

1P084

パルス伝播効果を含めた最適制御シミュレーションの開発

(東北大院・理) ○中島 薫、大槻 幸義、河野 裕彦

Development of optimal control simulation including pulse-propagation effects

(Tohoku Univ.) ○Kaoru Nakashima, Yukiyoshi Ohtsuki, Hirohiko Kono

[序] 最適制御法は、系を目的の状態に遷移させる最適なレーザー電場を変分法により導出する。しかし、従来の最適制御法ではレーザーパルスの伝播効果はあまり考慮されてこなかった。そのため、パルスエネルギーの吸収や分散によるパルス変形が大きな場合には制御の達成度合いが著しく低下する[1]。また近年、Bucksbaum らにより、ストークス光によって分子の特定の振動モードを励起する研究が報告された。この結果には、レーザーの自己位相変調が分子の非線形過程の制御に重要な役割を果たしていると考えられるが、主要な機構は完全に解明されていない[2]。これらの先行研究を背景として、本研究は、パルス伝播効果を陽に含めた最適制御シミュレーションの開発を行うことを目的とする。特に、レーザーパルスが分極相互作用を通して分子と非線形に相互作用する系を取り扱う。

[理論] CO 分子の整列制御を例とする。レーザーの伝播方向を x 軸、偏光方向を z 軸に取る。 $x=0$ での直線偏光、周波数 $\omega (= 800 \text{ nm})$ の入射パルスの複素包絡線関数を $\varepsilon(\mathbf{0}, t)$ と表す。CO 分子を剛体回転子として近似する。 ω が回転遷移の周波数に比べて非常に大きいため、 ω の 1 周期に渡ってサイクル平均をとったハミルトニアンで CO 分子のダイナミクスが記述される。

$$H = B\hat{j}^2 - \frac{1}{4}\{(\alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp})\cos^2\theta + \alpha_{\perp}\}\varepsilon(x, t)\varepsilon^*(x, t) \quad (1)$$

B は回転定数、 \hat{j} は角運動量演算子、 $\alpha_{\parallel}, \alpha_{\perp}$ はそれぞれ分極率テンソルの分子軸に平行、垂直な成分、 θ は分子軸とレーザー電場の偏光ベクトルのなす角である。分子はレーザーと分極相互作用のみを通して相互作用する。また、分子と電磁場からなる全系は以下の Maxwell-Liouville 方程式に従って時間発展する。

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \rho(x, t) = [H, \rho(x, t)] \quad (2)$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial x} + \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t}\right) \varepsilon(x, t) = \frac{ikN}{\epsilon_0} (\alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp}) \text{Tr}(\cos^2\theta \rho(x, t)) \varepsilon(x, t) \quad (3)$$

ここで、電場の包絡線は時空間的にゆっくり変化するという近似を用いた。伝播距離 x に対して、 $\rho(x, t)$ は分子の密度演算子、 k はレーザーパルスの波数であり、 ϵ_0 は真空での誘電率、 N は媒質の密度を表す。CO の分子軸をレーザーパルスの偏光ベクトルに平行に揃えることを制御目的とする。制御目的の達成度合いを、全空間での積分を取った以下の汎関数で評価する。

$$F = \frac{1}{M} \int_0^M dx \text{Tr}(\cos^2\theta \rho(x, t_f)) \quad (4)$$

t_f は制御の終時刻、 M は媒質の長さである。(4) の汎関数に対して、分子と電磁場が(2),(3)式に従い時間発展することを拘束条件として、変分法により、最適パルスの設計方程式を得る。(2) のラグランジュ未定乗数 $\xi(x, t)$ から、終時刻条件 $\xi(x, t_f) = \cos^2\theta$ と運動方程式

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \xi(x, t) = [H, \xi(x, t)] - \frac{2i\hbar k}{\epsilon_0} N\{(\alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp}) \cos^2 \theta\} \text{Im}\{\zeta(x, t)\epsilon(x, t)\} \quad (5)$$

を得る。また、(3)のラグランジュ未定乗数 $\zeta(x, t)$ の境界条件 $\zeta(x, t_f) = \zeta(x, 0) = \zeta(M, t) = 0$ と偏微分方程式

$$\left(\frac{\partial}{\partial x} + \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t}\right) \zeta(x, t) = \zeta(x, t) \frac{ik}{\epsilon_0} N\{(\alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp}) \text{Tr}(\cos^2 \theta \rho(x, t))\} + \frac{i}{\hbar} \text{Tr}\{\xi^*(x, t) [-\frac{\delta H}{\delta \epsilon}, \rho(x, t)]\} \quad (6)$$

を同様にして得ることができる。実際のシミュレーションでは、(2),(3),(5),(6)を連立させて解く事で、最適な入射パルスの包絡線 $\epsilon(0, t) = -\lambda \zeta^*(0, t)$ を得る (λ :探索パラメータ)。これらは非線形の連立方程式であるため、共役勾配法等での繰り返し計算を必要とする。なお、数値計算において、時間はCOの

回転周期 $T_{\text{rot}} \equiv \frac{\hbar}{2B} \cong 8.7 \text{ ps}$ を単位に表す。

[準備評価] 準備評価として、従来の最適制御法[3]により得られた $t_f = T_{\text{rot}}$ とした CO 分子の整列制御の最適パルスを長さ約 2 mm の媒質に入射した場合の伝播効果を見積もった。回転温度 0 K, 媒質の密度を 10^{24} m^{-3} と仮定した。結果は図 1,2 のようになる。パルス波形はほとんど変化せず、従来の伝播を考慮しない最適制御を用いても高い達成度合いを得られることがわかった。この結果は、媒質の密度を変えても変化しない。これらのことから、非共鳴回転ラマン遷移を通じてレーザーパルスと相互作用する媒質にパルスを伝播させた場合、媒質から放出されるストークス光の影響によりパルスは位相変調を受けるが、共鳴媒質を通過する際の吸収や分散に比べて極めて小さく、制御度合いは低下しないことが確認された。

当日の発表では、上述の最適化アルゴリズムをメタノール分子の振動ラマンモードの選択的励起に適用し、シミュレーション結果を発表する予定である。

[1]N. Wang and H. Rabitz *J. Chem. Phys.* **104**, 22 (1996)

[2]T. C. Weinacht *et al.*, *J. Phys. Chem. A* **103**, 10166 (1999)

[3] H.Abe and Y.Ohtsuki, *Phys. Rev A* **83**, 053410 (2011)

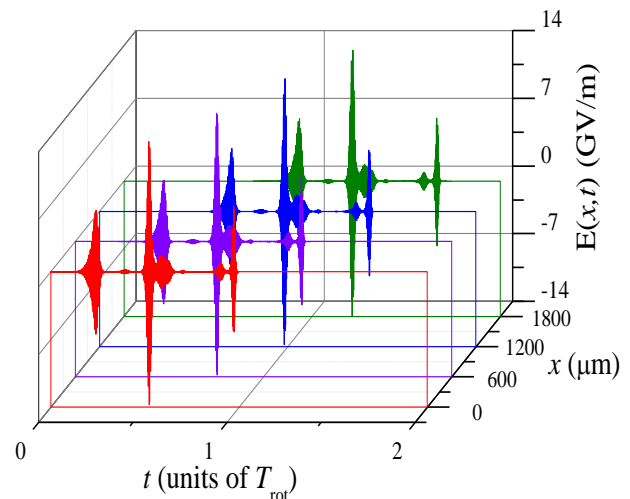


図 1 : 従来の最適制御パルスを $x=0$ で入射した場合の各位置でのパルスの時間発展

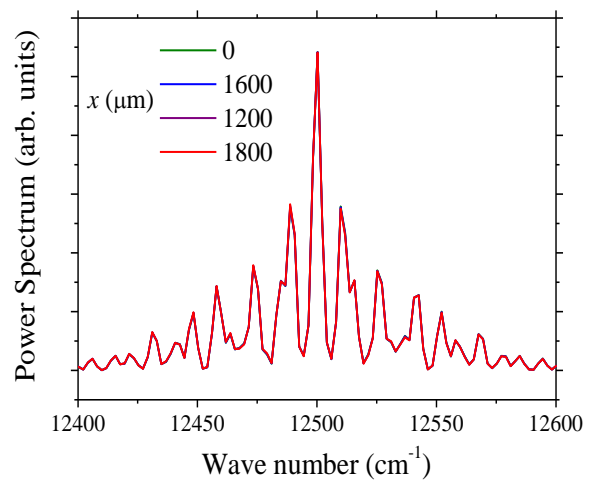


図 2 : 各位置でのパルスの強度スペクトル